

PUBLICATION NUMBER : 09110547
PUBLICATION DATE : 28-04-97

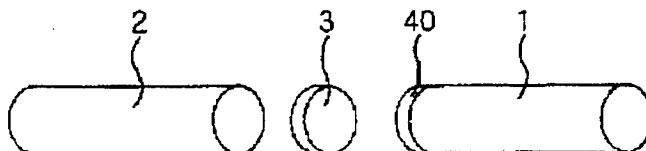
APPLICATION DATE : 11-10-95
APPLICATION NUMBER : 07290265

APPLICANT : NGK SPARK PLUG CO LTD;

INVENTOR : ITO MASAYA;

INT.CL. : C04B 37/02 B23K 1/19

TITLE : PRODUCTION OF BONDED MATERIAL
OF CERAMIC MEMBER AND
ALUMINUM MEMBER



ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method capable of selecting an aluminum member in a wide range and bonding the aluminum member to a ceramic member at a low temperature, readily and in high strength by using a specific brazing filler metal.

SOLUTION: This method for producing a bonded material of a ceramic member 1 and an aluminum member 2 comprises forming a metal layer 40 consisting essentially of Al on the surface of a ceramic member 1 and bonding the aluminum member 2 to the metal layer 40 by using a brazing filler metal 3 containing $\geq 93\text{wt.}\%$, Al, Si and Cu.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-110547

(43)公開日 平成9年(1997)4月28日

(51)Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 4 B 37/02			C 0 4 B 37/02	B
B 2 3 K 1/19			B 2 3 K 1/19	B

審査請求 未請求 請求項の数8 F D (全 7 頁)

(21)出願番号 特願平7-290265

(22)出願日 平成7年(1995)10月11日

(71)出願人 000004547

日本特殊陶業株式会社

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号

(72)発明者 田中 智雄

愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日
本特殊陶業株式会社内

(72)発明者 伊藤 正也

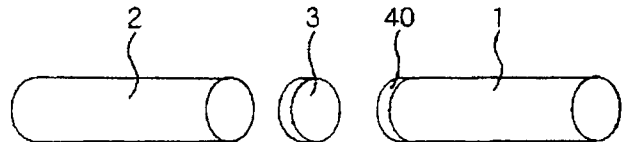
愛知県名古屋市瑞穂区高辻町14番18号 日
本特殊陶業株式会社内

(54)【発明の名称】 セラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法

(57)【要約】

【課題】 本発明の課題は、セラミックス部材とアルミニウム部材を低融点のろう材を用いることによりアルミニウム部材を広範囲に選択でき、低温で容易に且つ高強度に接合する方法を提供することである。

【解決手段】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを93重量%以下含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを93重量%以下含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項2】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを18～93重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項3】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを18～80重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項4】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にZnを93重量%以下含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項5】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にZnを18～93重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項6】 セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にZnを18～80重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合することを特徴とするセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項7】 前記ろう材にFe、Mg、Mn及びTiの群から選ばれる少なくとも1種が含まれていることを特徴とする請求項1～6のいずれかに記載のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【請求項8】 前記金属層の厚さが0.08μm以上であることを特徴とする請求項1～7のいずれかに記載のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、セラミックス部材と、純アルミニウム部材又はアルミニウム合金部材（以下「アルミニウム部材」とも言う）との接合体の製造方

法に関し、構造部材等に好適に使用される接合体の製造方法に関する。

【0002】

【従来技術】アルミニウム部材（鋳物材、展伸材等：融点460℃以上）は、種々の分野において利用が進んでおり、その諸特性を生かすべく、異種材料との複合化の試みがなされている。この異種材料の1つとしてセラミックス部材が挙げられよう付け接合による複合化が期待される。従来のろう付け接合法には、セラミックス部材とアルミニウム部材とをJISに規格されるろう材を用いることによって接合するものが知られている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかし、JISに規格されるろう材の融点は585℃以上（JIS-BA4145：融点585℃、JIS-BA4045：融点590℃）であり、この温度に近い融点を持つアルミニウム部材とセラミックス部材との接合は、加熱によりろう材を溶かし接合する時にアルミニウム部材も同時に溶けてしまい実質的に接合できなかった。また、仮に接合出来たとしてもその接合体は強度的に問題があり、実用上問題があった。従って、JISに規格されるろう材を用いて接合する手法は、比較的融点の高い展伸材（融点600℃以上）の一部にしか使用できず、融点の低い鋳物材においては、大半が接合は不可能であった。

【0004】そこで、本発明は、セラミックス部材とアルミニウム部材とを低融点のろう材を用いて接合することによりアルミニウム部材を広範囲に選択でき、低温で容易に且つ高強度に接合する製造方法を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】その第1の手段は、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを93重量%以下含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。その第2の手段は、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを18～93重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。その第3の手段は、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成し、該金属層上にZnを18～80重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。その第4の手段は、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にZnを93重量%以下含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアル

ミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。その第5の手段は、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にZnを18～93重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。その第6の手段は、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成し、該金属層上にZnを18～80重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いてアルミニウム部材を接合するセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法である。前記手段の前記ろう材にFe、Mg、Mn及びTiの群から選ばれる少なくとも1種が含まれているセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法が好ましい。前記手段の前記金属層の厚さが0.08 μ m以上であるセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法が好ましい。

【0006】ここで、上記手段において、セラミックス部材の表面に金属層を形成する方法として蒸着、スパッタリング、メッキ等の方法がある。ここで「Alを主成分とする金属層」は、純粋なAlからなる金属層でもよいし、ろう材とのヌレ性を十分保つことができれば他の成分を含んだ金属層でもよい。他の成分としては、例えばSi、Cuである。ここで、「Alを主成分とする金属層が最上層となる複数の層」とは、セラミックス部材の表面に2以上の層を形成し、少なくとも最上層がAlを主成分とする金属層であることを意味する。そして、最上層の下層、即ち、「最上層がAlを主成分とする金属層」と「セラミックス部材」との間の中間金属層は、セラミックス部材と反応性良好な1層以上の金属層であることが好ましい。具体的には、Ti、Zr等の活性金属層が良い。また、本発明のセラミックス部材は、非酸化物セラミックスとして Si_3N_4 、 SiC 、 AlN 、 TiN 、 TiC 等、酸化物セラミックスとして Al_2O_3 、 ZrO_2 、 TiO_2 等、酸窒化物セラミックスとしてサイアロン等又はこれらの複合材料、 Si_3N_4 - TiN 、 ZrO_2 - TiN 等が適用可能である。

【0007】

【作用】上記第1及び4の手段の製造方法は、93重量%以下のZnを必須成分として含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いて接合するため、そのろう材の融点は380～584℃となりJIS規格のろう材の融点より低くなる。その結果、これらの融点以上の固相線温度を有するアルミニウム部材（鋳造材、展伸材）を用いた接合が可能となるため、JIS規格のろう材を用いた場合より多種のアルミニウム部材を接合部材として選択が可能となる。また、Znを93重量%以下含有するとともにAl、Si及びCuを含有す

るろう材は、アルミニウム部材（鋳造材、展伸材）やセラミックス部材の接合面に形成したセラミックス部材の接合面に形成したAlを主成分とする金属層に対してヌレ性が向上し高強度な接合が可能となる。

【0008】また、上記第2及び5の手段の製造方法はZnを18～93重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いて接合するため、そのろう材の融点が380～530℃となりJIS規格のろう材の融点より低くなる。その結果、これらの融点以上の固相線温度を有するアルミニウム部材（鋳造材、展伸材）を用いた接合が可能となるため、JIS規格のろう材を用いた場合より多種のアルミニウム部材を接合部材として選択が可能となる。また、Znを18～93重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材は、アルミニウム部材（鋳造材、展伸材）やセラミックス部材の接合面に形成したセラミックス部材の接合面に形成したAlを主成分とする金属層に対してヌレ性が向上し高強度な接合が可能となる。

【0009】更にまた、上記第3及び6の手段の製造方法はZnを18～80重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材を用いて接合するため、そのろう材の融点が380～530℃となりJIS規格のろう材の融点より低くなる。その結果、これらの融点以上の固相線温度を有するアルミニウム部材（鋳造材、展伸材）を用いた接合が可能となるため、JIS規格のろう材を用いた場合より多種のアルミニウム部材を接合部材として選択が可能となる。また、Znを18～80重量%含有するとともに、Al、Si及びCuを含有するろう材は、アルミニウム部材（鋳造材、展伸材）やセラミックス部材の接合面に形成したセラミックス部材の接合面に形成したAlを主成分とする金属層に対してヌレ性が向上し高強度な接合が可能となる。

【0010】前記手段において、Znの含有量が18重量%を越えると、ろう材を箔として製作した場合に優れた延性を有する。また、Znの含有量が18～93重量%である場合、接合強度が向上し、更にはZnの含有量が18～80重量%とすることにより、接合強度が格段に向上することとなる。

【0011】前記各手段の前記ろう材にFe、Mg、Mn及びTiの群から選ばれる少なくとも1種が含まれていると、ろう材の融点の低下、ヌレ性の向上、時効硬化促進等の効果が得られ、ひいては接合強度を向上させることができる。また、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層を形成することにより、セラミックス部材の表面とろう材とのヌレ性が向上しアルミニウム部材との接合強度を高めることができる。また、セラミックス部材の表面にAlを主成分とする金属層が最上層となる複数の層を形成することにより、セラミックス部材の表面とろう材とのヌレ性が向上しアルミニウム部材との接合強度を高めることができる。更に、「Alを主

成分とする金属層」の厚さが $0.08\mu\text{m}$ より薄い場合には接合強度は低い、 $0.08\mu\text{m}$ 以上とすることにより高強度な接合体を得ることができる。それはA1を主成分とする金属層が、接合時にセラミックス部材の表面とろう材とのヌレ性を大きくする。但し、 $5\mu\text{m}$ を越えるような極端にA1を主成分とする金属層を厚くすることは、接合体の製造コストを高くするため好ましくない。また、A1を主成分とする金属層単独であってもセラミックス部材との密着強度は高いものであるが、A1を主成分とする金属層とセラミックス部材との間にセラミックス部材と反応性良好な1層以上の中間金属層を介在させることにより、セラミックス部材とA1を主成分とする金属層の密着強度を向上させ、ひいては、接合強度を高めることとなる。例えば、Ti層、Zr層、Mo+Mn層等の中間金属層として一層以上介在させることが好ましい。

【0012】

【発明の実施の形態】本発明のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法を図1と図2を用いて説明する。図1は、本発明の一実施例であるセラミックス部材1の表面にA1を主成分とする金属層40を形成し、該金属層40上にA1を主成分とする所定のろう材3を用いてアルミニウム部材2を接合するセラミックス部材1とアルミニウム部材2との接合体の製造方法の接合する直前の状態を表す。図2は、本発明の他の実施

例であるセラミックス部材1の表面にA1を主成分とする金属層40が最上層となる複数の層4を形成し、該金属層40上に所定のろう材を用いてアルミニウム部材2を接合するセラミックス部材1とアルミニウム部材2との接合体の製造方法の接合する直前の状態を表す。A1を主成分とする金属層40とセラミックス部材1の間には、複数の層4の一部である中間金属層41がある。ここで中間金属層41が「A1を主成分とする層」である場合には結局セラミックス部材1上には、A1を主成分とする金属層のみ存在することとなり、上記一の製造方法と同じ製造方法となる。

【0013】—実験例1—

表1に示す種々のセラミックス部材1（直径18mm、長さ75mm）及び種々のアルミニウム部材2（直径18mm、長さ75mm）を準備し、表1に示すろう材3を用いて接合する。アルミニウム部材2は、JISに規格される各種アルミニウム部材鋳物材を用いた。各セラミックス部材1の表面には、図1に示すように予め表1に示す金属層40がスパッタリング、蒸着等で形成される。別途、ろう材3は、表1に示される組成を溶解し回転するCu製水冷ロール上に流すことにより（液体急冷法）、箔（直径18mm、厚さ $100\mu\text{m}$ ）を準備した。

【0014】

【表1】

	No.	アルミニウム 部材 JIS	セラミック 部材	金 属 層			ろう材の組成 (重量%)					ろう材 融点 (℃)	接 合 温 度 (℃)	引張り 強度 (kgf/mm ²)
				元 素	厚さ (μm)	形成方法	Al	Si	Cu	Zn	その他			
実施例	1	A2024	ZrO ₂	Al	0.08	スパッタ	残 部	3.92	21.05	18.84	0.1 Fe	496	500	24.7
"	2	"	"	"	0.08	"	"	3.74	22.52	16.90		505	510	17.2
"	3	"	"	"	0.15	"	"	3.5	20.4	22.3		489	500	25.5
"	4	A7075	"	"	0.18	"	"	3.02	17.5	33.28	0.1 Fe 0.1 Ti	472	490	26.2
"	5	"	"	"	0.20	"	"	3.7	15.7	41.4		454	470	26.9
"	6	A2024	Al ₂ O ₃	"	0.5	"	"	3.4	14.1	47.3	0.1 Mn	424	"	20.2
"	7	AC9A	Si ₃ N ₄	"	1.0	"	"	2.41	14.3	50.86	0.1 Mg	421	"	20.5
"	8	"	Al ₂ O ₃	"	1.5	蒸着	"	1.8	10.11	61.89		404	"	20.5
"	9	ADC12	ZrO ₂	"	2.0	"	"	1.18	6.29	77.0	0.1 Ti 0.1 Mg	394	"	26.2
"	10	"	Al ₂ O ₃	"	2.5	"	"	1.09	3.97	82.2		380	"	19.9
"	11	"	"	"	3.0	"	"	1.05	2.37	92.73	0.1 Fe 0.1 Mg	382	"	18.9
比較例	12	A1050	Si ₃ N ₄	Al	0.08	スパッタ	"	10.0	0.25		0.1 Mg 0.1 Mn	590	600	4.5
"	13	A5083	Al ₂ O ₃	"	0.5	"	"	8.05	16.93		0.1 Mg	552	560	9.5
"	14	A1050	ZrO ₂	"	3.0	蒸着	"	0.02		99.98		420	470	5.4

【0015】そして、アルミニウム部材2、ろう材3、セラミックス部材1の順に重ね合わせ、治具に固定し、炉内に配置、不活性ガス雰囲気にてろう材融点近傍で30分の保持を行い接合を行い、接合体を得た。接合後、JIS4号に従い引っ張り試験片を仕上げた後、試験に供した。結果を表1に示す。表1に示す様に、本発明の製造方法により得られた接合体は、高い接合強度を有していた。具体的な破断の形態は、まず接合界面のアルミニウム部材2が変形し、次にそのアルミニウム部材2とセラミックス部材1の界面から破断した。その破面は、セラミックス部材1の破断面にアルミニウム部材2が付着した形となった。ろう材による接合強度は、アルミニウム部材2又はセラミックス部材1自身の強度と同等な強度を有していた。これに対し、比較例の製造方法による接合体は、接合が不十分であり、起点、破断の進行が接合界面又はろう材3層中で生じ、接合強度は低かった。

【0016】—実験例2—

表2に示す種々のセラミックス部材1（直径18mm、長さ75mm）及び種々のアルミニウム部材2（直径18mm、長さ75mm）を準備し、表2に示すろう材3を用いて接合する。アルミニウム部材2は、JISに規格される各種アルミニウム部材鋳物材を用いた。各セラミックス部材1の表面には、予めAlを主成分とする金属層40が最上層となる複数の層4が形成される。具体的には、表2に示す様にセラミックス部材1表面に中間金属層41を表2に示す形成方法で形成後、最上層となる金属層40を形成する。別途、ろう材3は、表2に示される組成を溶解し回転するCu製水冷ロール上に流すことにより（液体急冷法）、箔（直径18mm、厚さ100μm）を準備した。

【0017】

【表2】

No.	セラミックス部材 JIS	セラミックス部材	中間金属層			最上層の金属層			ろう材の組成(重量%)					ろう材 融点 (°C)	接合 温度 (°C)	引張り 強度 (kgf/cm ²)
			元素	厚さ(μm)	形成方法	元素	厚さ(μm)	形成方法	Al	Si	Cu	Zn	その他			
実施例	21	A2024	Ti-Mo	各0.1	スパッタ	Al	0.08	スパッタ	炭素	3.92	21.05	18.84	0.1 Fe	496	500	23.5
"	22	"	"	"	"	"	0.08	"	"	3.74	22.52	16.90	"	505	510	18.3
"	23	"	"	"	"	"	0.15	"	"	3.5	20.4	22.3	"	489	500	24.2
"	24	A7075	"	"	"	"	0.18	"	"	3.02	17.5	33.28	0.1 Fe 0.1 Ti	472	490	26.9
"	25	"	W	20	焼きつけ	"	0.4	"	"	3.7	15.7	41.4	"	454	470	27.2
"	26	A2024	Ti-Mo	各0.1	炭素	"	0.5	炭素	"	3.4	14.1	47.3	0.1 Mn	424	"	20.9
"	27	AC8A	"	"	"	"	1.0	"	"	2.41	14.3	50.86	0.1 Mg	421	"	20.4
"	28	"	Mo-Mn	20	焼きつけ	"	1.5	"	"	1.8	10.11	61.89	"	404	"	20.4
"	29	ADC12	Ti-Mo	各0.1	スパッタ	"	2.0	スパッタ	"	1.18	6.29	77.0	0.1 Ti 0.1 Mg	394	"	27.0
"	30	"	"	"	炭素	"	2.5	炭素	"	1.09	3.97	82.2	"	380	"	20.2
"	31	"	Ag-Cu-Ti 4-1	20	ろう付	"	3.0	"	"	1.05	2.37	92.73	0.1 Fe 0.1 Mg	382	"	19.2
比較例	32	A1050	Ti-Mo	各0.1	炭素	"	0.08	炭素	"	10.0	0.25	"	0.1 Mg 0.1 Mn	590	600	3.9
"	33	A5083	"	"	スパッタ	"	1.5	スパッタ	"	8.05	16.93	"	0.1 Mg	552	560	9.2
"	34	A1050	W	20	焼きこみ	"	3.0	"	"	0.02	"	99.98	"	420	470	4.3

【0018】そして、アルミニウム部材2、ろう材3、セラミックス部材1の順に重ね合わせ、治具に固定し、炉内に配置、不活性ガス雰囲気にてろう材融点近傍で30分の保持を行い接合を行い、接合体を得た。接合後、JIS4号に従い、引っ張り試験片に仕上げ試験に供した。結果を表2に示す。表2に示す様に、本発明の製造方法により得られた接合体は、高い接合強度を有していた。具体的な破断の形態は、まず接合界面のアルミニウム部材2が変形し、次にそのアルミニウム部材2とセラ

ミックス部材1の界面から破断した。その破面は、セラミックス部材1の破断面にアルミニウム部材2が付着した形となった。ろう材による接合強度は、アルミニウム部材2又はセラミックス部材1自身の強度と同等な強度を有していた。これに対し、比較例の製造方法による接合体は、接合していないかそれとも起点、破断の進行は接合界面又は、ろう材3層中であり接合強度は低かった。

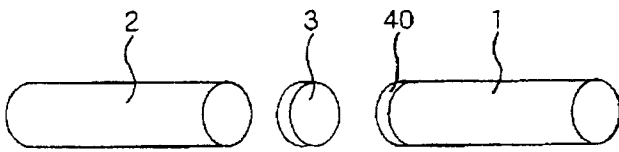
【0019】

【発明の効果】本発明による製造方法を用いることにより、特に融点が低くろう付けが困難なアルミニウム部材、鋳物材とセラミックス部材とが接合できる。従って、接合部材としてのアルミニウム部材は、展伸材も含め非常に広範囲に選択することができ、且つ高強度なセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体が得られることとなる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実験例1のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法の接合する直前の状態を示す図である。

【図1】



【図2】本発明の実験例2のセラミックス部材とアルミニウム部材との接合体の製造方法の接合する直前の状態を示す図である。

【符号の説明】

- 1・・・セラミックス部材
- 2・・・アルミニウム部材
- 3・・・ろう材
- 4・・・A1を主成分とする金属層が最上層となる複数の層
- 40・・・A1を主成分とする金属層
- 41・・・中間金属層

【図2】

